

Docket No.: UDK-0022
(PATENT)

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Patent Application of:
Shinji Suzuki

Application No.: Not Yet Assigned

Confirmation No.:

Filed: Concurrently Herewith

Art Unit: N/A

For: JOINING METHOD

Examiner: Not Yet Assigned

CLAIM FOR PRIORITY AND SUBMISSION OF DOCUMENTS

MS Patent Application
Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

Dear Sir:

Applicant hereby claims priority under 35 U.S.C. 119 based on the following prior foreign application filed in the following foreign country on the date indicated:

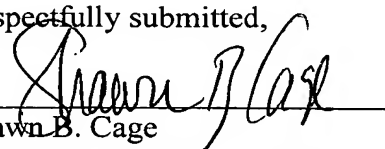
<u>Country</u>	<u>Application No.</u>	<u>Date</u>
Japan	2003-118001	April 23, 2003

In support of this claim, a certified copy of the said original foreign application is filed herewith.

Dated: April 22, 2004

Respectfully submitted,

By


Shawn B. Cage

Registration No.: 51,522
RADER, FISHMAN & GRAUER PLLC
1233 20th Street, N.W., Suite 501
Washington, DC 20036
(202) 955-3750
Attorneys for Applicant

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2003年 4月23日
Date of Application:

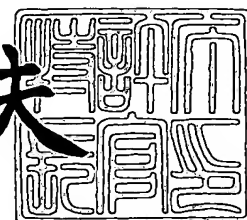
出願番号 特願2003-118001
Application Number:
[ST. 10/C]: [JP 2003-118001]

出願人 ウシオ電機株式会社
Applicant(s):

2004年 2月19日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井康夫



出証番号 出証特2004-3011245

【書類名】 特許願

【整理番号】 030055

【提出日】 平成15年 4月23日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C12M 1/00

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市青葉区美しが丘5丁目14番6はづきビル1階 ウシオ電機株式会社内

【氏名】 鈴木 信二

【特許出願人】

【識別番号】 000102212

【氏名又は名称】 ウシオ電機株式会社

【代理人】

【識別番号】 100078754

【弁理士】

【氏名又は名称】 大井 正彦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 015196

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9719171

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 接合方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 オルガノシロキシ基が存在する表面を有する接合基材に、水酸基が存在する表面を有する被接合材を接合するための接合方法であって、

接合基材のオルガノシロキシ基が存在する表面を波長 220 nm 以下の紫外線を照射することによって酸化処理し、この酸化処理された表面に、被接合材の水酸基が存在する表面を密着させる工程を有することを特徴とする接合方法。

【請求項 2】 接合基材がシリコンよりなるものであり、被接合材がガラスよりなるものであることを特徴とする請求項 1 に記載の接合方法。

【請求項 3】 接合基材が、ヘキサメチルジシラザンによる表面改質処理によってオルガノシロキシ基が存在する表面が形成されたものであることを特徴とする請求項 1 に記載の接合方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、2つの部材を接合するための接合方法に関し、詳しくはマイクロリアクタを作製する工程において好適に用いられる接合方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

近年、生化学分野において、例えばシリコン、シリコーン、ガラスなどよりなる小さな基板上に、半導体微細加工の技術によってマイクロスケールの分析用チャネルなどを形成したマイクロチップよりなるマイクロリアクタを用いて微量の試薬の分離、合成、抽出、分析などを行う手法が注目されている。

このようなマイクロリアクタを用いた反応分析システムは、マイクロ・トータル・アナリシス・システム（以下、「 μ TAS」という。）と称されており、 μ TAS によれば、試薬の体積に対する表面積の比が大きくなることなどから高速かつ高精度の反応分析を行うことが可能となり、また、コンパクトで自動化されたシステムを実現することが可能となる。

實際上、 μ TASによれば、例えば従来の反応分析システムにおいて数時間～数十時間を要していた反応分析を、数分～数十分間と非常に短時間で行うことができる。

【0003】

マイクロリアクタの或る種のものとしては、例えば注入ポート、排出ポートおよびこれらを連通するチャンネルが形成された基板と、当該基板に形成された注入ポート、排出ポートおよびチャンネルを密閉するよう積重された状態で接合された透明性を有する基板とを有し、注入ポートに形成されている試薬注入用貫通孔を介して当該注入ポートに試薬が供給され、この試薬が反応路となるチャンネルを通過し、最終的に排出ポートに形成されている試薬排出用貫通孔を介して排出される構成のものが知られている。

【0004】

一般に、2つの基板を接合するためには接着剤が用いられているが、マイクロリアクタにおいては、基板の接合に接着剤を用いた場合には、この接着剤が分析すべき反応系に悪影響を与えるおそれがある、という問題がある。

【0005】

而して、マイクロリアクタを構成する2つの基板を接合するための方法としては、例えば2つの基板として、シリコン基板とガラス基板とを用いる場合には、温度300～500℃に加熱した状態の2つの基板間に電圧を印加することによって当該2つの基板を接合する陽極接合法（例えば、特許文献1参照。）、2つの基板として、ポリジメチルシロキサン基板とガラス基板とを用いる場合には、ポリジメチルシロキサン基板を構成するポリジメチルシロキサンの有する平坦な表面に対する自己溶着性を利用して2つの基板を接合する手法（例えば、特許文献2参照。）などが提案されている。

【0006】

しかしながら、陽極接合法においては、2つの基板を加熱しつつ電圧を印加するための大掛かりな装置が必要となる、という問題がある。

また、自己溶着性を利用する手法においては、接合された2つの基板の接着強度が小さいため、この手法を用いて作製したマイクロリアクタは、例えば注入ポ

ートに試薬を注入するためにポンプなどによって圧力が加えられた際に、この圧力によって接合面に隙間が生じて反応分析実行中に所望の密閉状態を保持することができなくなるなどの弊害が生じるおそれがある、という問題がある。

【0007】**【特許文献1】**

特開平10-337173号公報

【特許文献2】

特開2002-85961号公報

【0008】**【発明が解決しようとする課題】**

本発明は、以上のような事情に基づいてなされたものであって、その目的は、2つの部材を接着剤を用いることなく、容易な手法によって強固に接合することのできる接合方法を提供することにある。

【0009】**【課題を解決するための手段】**

本発明の接合方法は、オルガノシロキシ基が存在する表面を有する接合基材に、水酸基が存在する表面を有する被接合材を接合するための接合方法であって、接合基材のオルガノシロキシ基が存在する表面を波長220nm以下の紫外線を照射することによって酸化処理し、この酸化処理された表面に、被接合材の水酸基が存在する表面を密着させる工程を有することを特徴とする。

【0010】

本発明の接合方法においては、接合基材がシリコンよりなるものであり、被接合材がガラスよりなるものであることが好ましい。

【0011】

本発明の接合方法においては、接合基材が、ヘキサメチルジシラザンによる表面改質処理によってオルガノシロキシ基が存在する表面が形成されたものであってもよい。

【0012】**【作用】**

本発明の接合方法によれば、接合基材におけるオルガノシロキシ基が存在している疎水性表面に特定波長の紫外線を照射することによって当該疎水性表面を酸化処理し、この酸化処理された表面に、水酸基が存在している親水性表面を有する被接合材の当該親水性表面を密着させることにより、接合基材の表面と、被接合材の表面とが結合エネルギーの大きい化学的な結合の作用によって接着されることから、接合基材と被接合材とを、接着剤を用いることなく、大掛かりで高価な装置を必要とすることのない容易な手法によって強固に接合することができる。

【0013】

【発明の実施の形態】

以下、本発明について詳細に説明する。

本発明の接合方法は、2つの部材を接合するための方法、具体的に、オルガノシロキシ基が存在する表面（以下、「疎水性表面」ともいう。）を有する接合基材の当該疎水性表面側に、水酸基が存在する表面（以下、「親水性表面」ともいう。）を有する被接合材を接合するための方法であって、接合基材の当該疎水性表面を、波長220nm以下の紫外線を照射することによって酸化処理し、この酸化処理された表面に、被接合材の当該親水性表面を密着させる工程を有する手法である。

【0014】

接合基材としては、ポリジメチルシロキサンなどのシリコンよりなるものが好適に用いられる。

一方、被接合材としては、ガラスよりなるものが好適に用いられる。

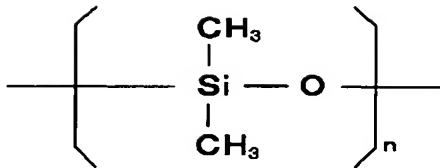
【0015】

以下、本発明の接合方法を、下記式（1）で表されるポリジメチルシロキサン樹脂よりなる基板（以下、「ポリシロキサン基板」ともいう。）を接合基材とし、ガラスよりなる基板（以下、「ガラス基板」ともいう。）を被接合材として用いた場合の例により詳細に説明する。

【0016】

【化1】

式(1)



【0017】

〔式中、nは繰り返し数を示す。〕

【0018】

先ず、例えば厚さ2mmのポリシロキサン基板（接合基材）10と、当該ポリシロキサン基板10に適合した大きさを有する、例えば厚さ1.1mmのガラス基板（被接合材）20とを用意する。

【0019】

ここに、ポリシロキサン基板10は、図1に示すようなオルガノシロキシ基が存在している状態の疎水性表面（図1において上面）を有しており、また、ガラス基板20は、水酸基が存在している状態（図3参照）の親水性表面（図3において下面）を有している。

【0020】

そして、図2に示すように、ポリシロキサン基板10の疎水性表面である表面11の上方（図2において上方）に、光源として、例えば波長172nmに輝線を有するエキシマランプ（図示せず）を配置し、例えば大気中などの酸素またはオゾンを含む雰囲気中において、光源を、例えば放射光の照度が10mW/cm²となる条件で点灯状態とすることにより、表面11全面に対して一斉に光源からの放射光を、例えば表面11に対する照射量が1000mJ/m²となるよう、100秒間照射する。

【0021】

このような紫外線照射処理においては、主として、酸素またはオゾンが光源から放射される紫外線と作用することによって活性酸素が発生し、この活性酸素がポリシロキサン基板10の表面11に接触することによって当該表面11が酸化

され、これにより、表面 11 は、オルガノシロキシ基に係るメチル基が脱離され、当該メチル基が結合していたケイ素原子に活性酸素が結合された状態となる。

このようにして、ポリシロキサン基板 10 の表面 11 は、その全面において酸化処理される。

【0022】

この例においては、紫外線照射処理が大気中において行われており、この処理雰囲気中に水分が存在していることから、活性酸素に水素原子が結合することとなるため、ポリシロキサン基板 10 の表面 11 は、ケイ素原子に水酸基が結合された状態（図 3 参照）となる。

【0023】

次いで、図 3 に示すように、ポリシロキサン基板 10 の表面 11 に、ガラス基板 20 の親水性表面である表面 21 を重ね合わせ、その状態を、例えば数十秒間保持することによって、ポリシロキサン基板 10 の表面 11 と、ガラス基板 20 の表面 21 とを密着させることにより、図 4 に示すように、表面 11 と表面 21 との界面において水素結合が形成される。

このようにして、ポリシロキサン基板 10 の表面 11 と、ガラス基板 20 の表面 21 とが水素結合の作用によって接着されることにより、当該ポリシロキサン基板 10 とガラス基板 20 とが高い接着強度によって接合される。

【0024】

ここに、紫外線照射処理および密着処理が、例えば乾燥空気（例えば、露点が -50°C 以下である空気）中、純酸素ガス中、一酸化二窒素ガス（笑気ガス）中などの水分の存在しない雰囲気中において行われる場合においては、ポリシロキサン基板 10 の表面 11 が酸素原子が存在する表面状態でガラス基板 20 の表面 21 と密着されることとなるため、図 5 に示すように、ポリシロキサン基板 10 の表面 11 と、ガラス基板 20 の表面 21 との界面において共有結合が形成され、この共有結合の作用により、ポリシロキサン基板 10 の表面 11 と、ガラス基板 20 の表面 21 とが接着されて当該ポリシロキサン基板 10 とガラス基板 20 とが接合される。

この共有結合は、水素結合よりも結合エネルギーが大きいため、接合されたポ

リシロキサン基板 10 とガラス基板 20 との接着強度が一層高いものとなる。

【0025】

ポリシロキサン基板 10 としては、例えばポリジメチルシロキサンのプレポリマーと、キュアリング剤とを、例えば 10 : 1 の割合で混合し、攪拌および真空脱気処理することによってプレポリマー混合液を調製し、このプレポリマー混合液を、ポリシロキサン基板に必要とされる形状に対応した形状を有するマスター上に注いでキュアリング処理することによってポリジメチルシロキサン層を得、このポリジメチルシロキサン層をマスターから引き剥がすことによって得られるシート体を用いることができる。

【0026】

光源としては、波長 220 nm 以下の紫外線を放射するものが用いられる。

波長 220 nm 以下の紫外線を照射することにより、酸素またはオゾンを含有する雰囲気中において活性酸素を発生させることができ、ポリシロキサン基板 10 の表面 11 を酸化することができる。

また、光源としては、波長 200 nm 以下の紫外線を照射するものを用いることが好ましく、波長 200 nm 以下の紫外線を照射することにより、時間当たり発生させることのできる活性酸素量が大きくなるため、紫外線照射処理に要する時間を小さくすることができる。

【0027】

具体的に、光源としては、エキシマランプ、低圧水銀ランプ、重水素ランプなどを用いることができるが、例示した波長 172 nm に輝線を有するエキシマランプ、波長 185 nm に輝線を有する低圧水銀ランプまたは波長 120 ~ 200 nm の範囲に輝線を有する重水素ランプを好適に用いることができる。

【0028】

密着処理は、紫外線照射処理後 20 秒間以内に行うことが好ましい。

密着処理を紫外線照射処理終了後、直ちに行うことにより、接合されたポリシロキサン基板 10 とガラス基板 20 とに高い接着強度を確実に得ることができる。

【0029】

以上のような接合方法によれば、ポリシロキサン基板 10 の表面 11 に特定波長の紫外線を照射することによって当該表面 11 を酸化処理し、この酸化された表面 11 に、ガラス基板 20 の表面 21 を密着させることにより、結合エネルギーの大きい水素結合あるいは共有結合の作用によってポリシロキサン基板 10 の表面 11 と、ガラス基板 20 の表面 21 とが接着され、また、この一連の工程を常温常圧環境下においても好適に行うことができるため、ポリシロキサン基板 10 とガラス基板 20 とを、接着剤を用いることなく、大掛かりで高価な装置を必要とすることのない容易な手法によって強固に接合することができる。

實際上、接合されたポリシロキサン基板 10 とガラス基板 20 との接着強度は、ポリシロキサン基板 10 のバルク強度よりも大きなものとなる。

【0030】

具体的に、ポリシロキサン基板サンプルと、当該ポリシロキサン基板サンプルに適用した形状を有するガラス基板サンプルとを用意し、前述の条件と同様の条件によって、大気中にてポリシロキサン基板サンプルの一面におけるほぼ中央に位置する一部の領域に紫外線を照射した後、当該一面にガラス基板サンプルを密着することによって2つの基板サンプルがほぼ中央部において接合した積重体を得、この積重体におけるポリシロキサン基板サンプルの両端をガラス基板サンプルに垂直な方向外方に引っ張る接着強度測定テストを行ったところ、最終的にポリシロキサン基板サンプルは破損したが、接合部分に剥離が生じることはなかった。

【0031】

以上において、本発明の接合方法を具体的な一例を用いて説明したが、本発明はこれに限定されるものではなく、接合基材の疎水性表面を特定波長の紫外線を照射することによって酸化処理し、この酸化処理された表面に、被接合材の親水性表面を密着させる工程を有する手法であればよい。

例えば、接合方法においては、接合基材として、図6に示すような表面状態を有するシリコンウエハなどのケイ素原子を含有する材料よりなるケイ素含有部材 31 の表面（図6において上面）を、例えば下記式（2）で表されるヘキサメチルジシラザン（HMD S）の蒸気にさらすことにより、図7に示すようなオルガ

ノシロキシ基が存在する表面状態に変質させる工程を経ることによって疎水性表面が形成されてなる基板を用いることもできる。

【0032】

【化2】

式(2)



【0033】

このようなヘキサメチルジシラザンによる表面改質処理が施された表面32を有する基板30を接合基材として用いた場合においても、疎水性表面である表面32を、酸素またはオゾンを含む霧囲気中において、波長220nm以下の紫外線を照射して酸化処理することにより、図8に示すようなオルガノシロキシ基に係るメチル基が脱離され、当該メチル基が結合していたケイ素原子に活性酸素が結合された状態とすることができる。そして、この基板30の表面32に、被接合材の親水性表面を密着させることにより、接合基材である基板30と被接合材とを水素結合または共有結合の作用によって接合することができる。

【0034】

以上のような本発明の接合方法は、接着剤を用いることなく、2つの部材を接合することができることから、マイクロリアクタを作製する工程において好適に用いることができる。

【0035】

具体的に、本発明の接合方法を用いた場合には、例えばシリコン樹脂よりなる基板（以下、「シリコン基板」ともいう。）の表面に、例えばエッチング法によって試薬注入用貫通孔を有する注入ポート、試薬排出用貫通孔を有する排出ポートおよびこれらを連通するチャネルなどの構造凹部を所定の位置に形成し、この表面全面を、常温常圧環境下の大気中において、波長220nm以下の紫外線を照射することによって酸化処理し、次いでこの酸化処理を施した表面を覆うようにガラス基板を密着させるという容易な手法により、シリコン基板に形成された構造凹部がガラス基板によって密閉された状態のマイクロリアクタを、接

着剤を用いることなく作製することができる。

このようにして作製されたマイクロリアクタによれば、接合されたシリコン基板とガラス基板との接着強度が大きいため、注入ポートに形成されている試薬注入用貫通孔を介して、ポンプなどの圧力によって当該注入ポートに試薬が供給され、この試薬が反応路となるチャネルを通過し、最終的に排出ポートに形成されている試薬排出用貫通孔を介して排出される一連の反応分析中に何らの弊害が生じることがない。

【0036】

また、本発明の接合方法は、例えば建材の接合などにも適用することが可能である。建材の接合に本発明の接合方法を適用した場合には、例えば接着剤に用いられている溶剤がシックハウス症候群の一因とされていることから、接着剤に起因するシックハウス症候群の発生を防止することができる、という利点がある。

【0037】

【発明の効果】

本発明の接合方法によれば、接合基材におけるオルガノシロキシ基が存在している疎水性表面に特定波長の紫外線を照射することによって当該疎水性表面を酸化処理し、この酸化処理された表面に、水酸基が存在している親水性表面を有する被接合材の当該親水性表面を密着させることにより、接合基材の表面と、被接合材の表面とが結合エネルギーの大きい化学的な結合の作用によって接着されることから、接合基材と被接合材とを、接着剤を用いることなく、大掛かりで高価な装置を必要とすることのない容易な手法によって強固に接合することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】

接合基材の表面状態を示す説明用模式図である。

【図2】

接合基材の疎水性表面に対して光源からの放射光を照射している状態を示す説明図である。

【図3】

接合基材の酸化処理された表面と共に、当該表面に重ね合わせられる被接合材の表面状態を示す説明用模式図である。

【図 4】

接合基材の表面と被接合材の表面とが接着された状態を示す説明用模式図である。

【図 5】

接合基材の表面と被接合材の表面とが接着された他の状態を示す説明用模式図である。

【図 6】

シリコンウエハよりなるケイ素含有部材の表面状態を示す説明用模式図である。

【図 7】

図 6 のケイ素含有部材に対して表面改質処理を施すことによって得られる基板の表面状態を示す説明用模式図である。

【図 8】

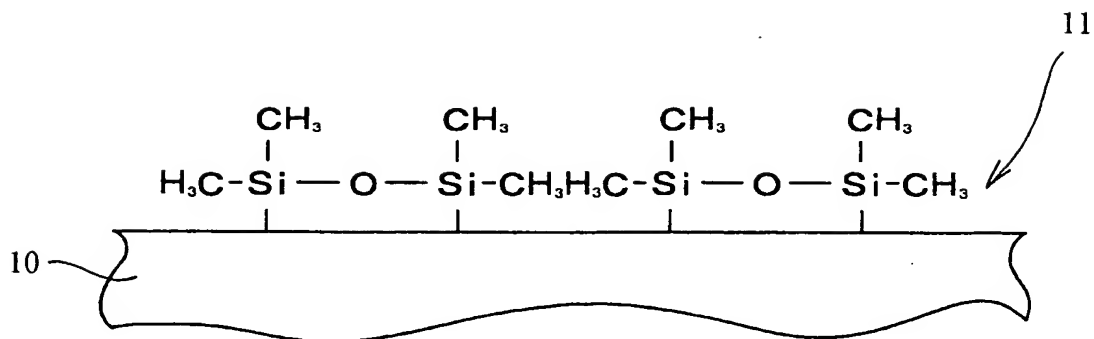
図 7 の基板の酸化処理された表面の表面状態を示す説明用模式図である。

【符号の説明】

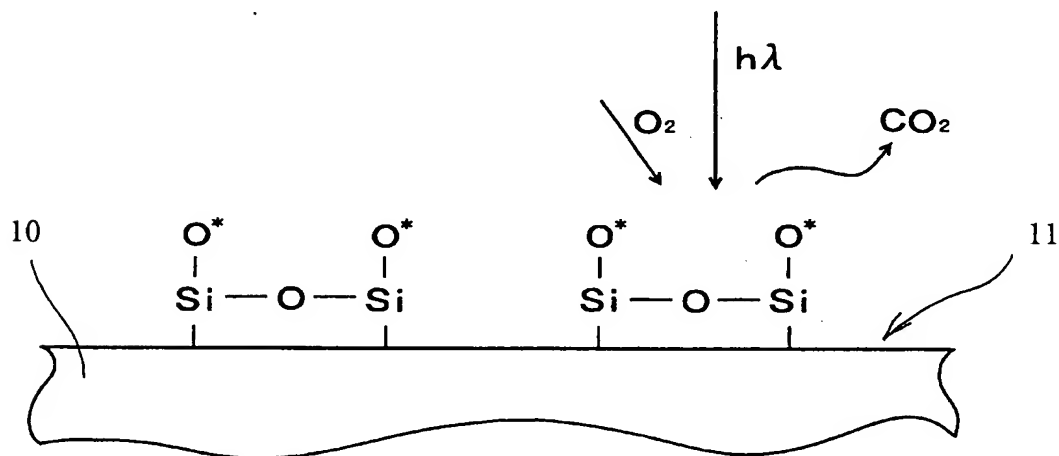
- 10 ポリシロキサン基板
- 11 表面
- 20 ガラス基板
- 21 表面
- 30 基板
- 31 ケイ素含有部材
- 32 表面

【書類名】 図面

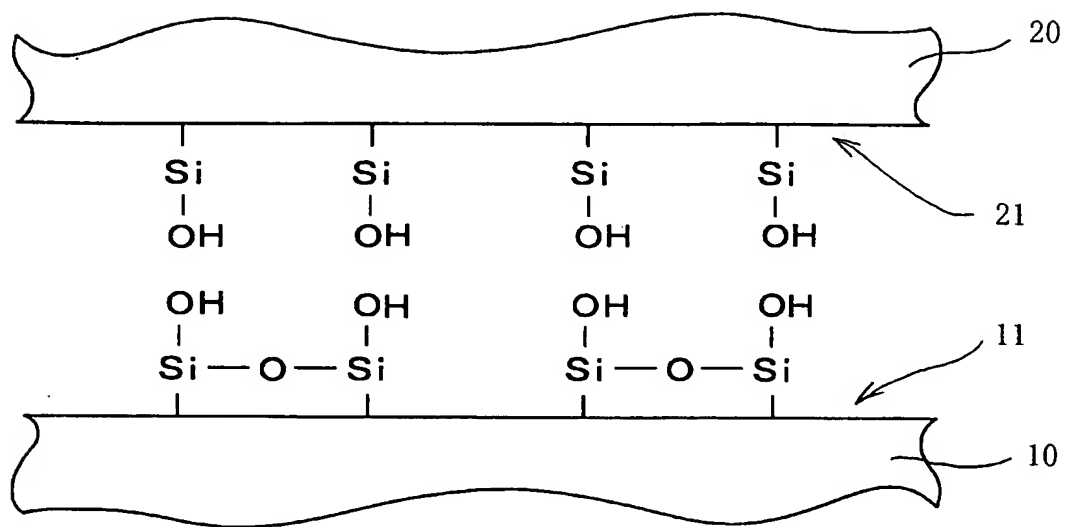
【図 1】



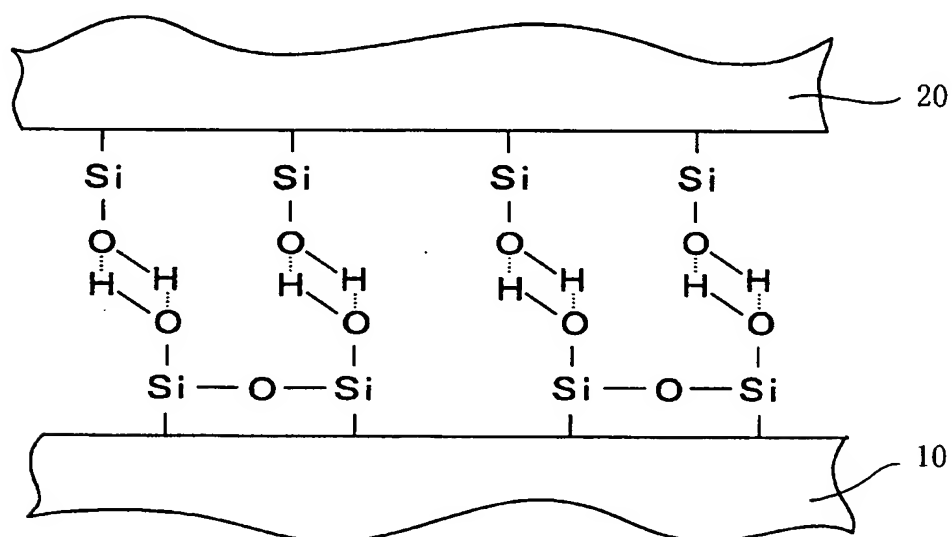
【図 2】



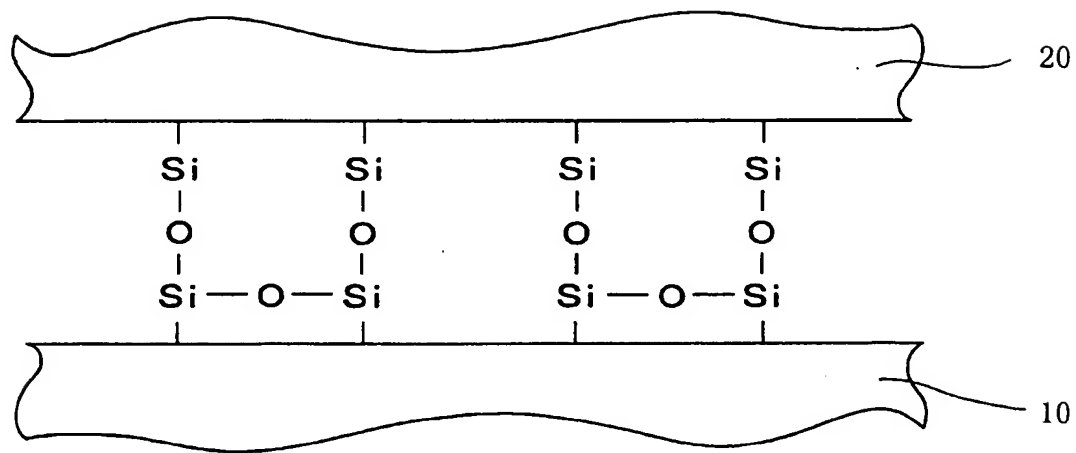
【図 3】



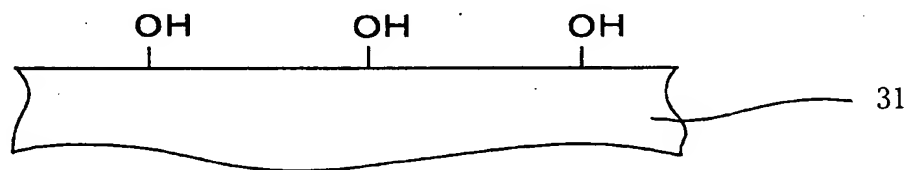
【図 4】



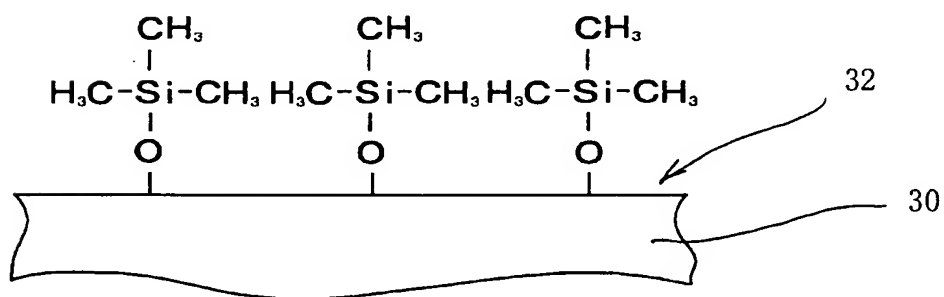
【図 5】



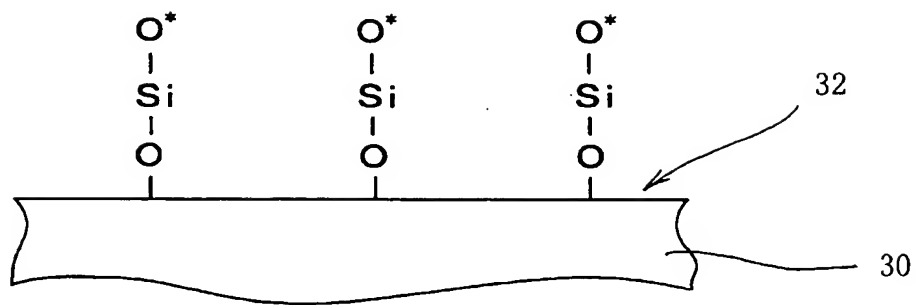
【図 6】



【図 7】



【図 8】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 2つの部材を接着剤を用いることなく、容易な手法によって強固に接合することのできる接合方法を提供すること。

【解決手段】 接合方法は、オルガノシロキシ基が存在する表面を有する接合基材に、水酸基が存在する表面を有する被接合材を接合するための接合方法であって、接合基材のオルガノシロキシ基が存在する表面を波長220nm以下の紫外線を照射することによって酸化処理し、この酸化処理された表面に、被接合材の水酸基が存在する表面を密着させる工程を有することを特徴とする。

【選択図】 なし

特願 2 0 0 3 - 1 1 8 0 0 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [0 0 0 1 0 2 2 1 2]

1. 変更年月日 1 9 9 0 年 8 月 3 0 日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都千代田区大手町 2 丁目 6 番 1 号 朝日東海ビル 1 9 階

氏 名 ウシオ電機株式会社